

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-059398
(43)Date of publication of application : 05.03.1996

(51)Int.CI. C30B 29/16
C01G 49/06
C09C 1/22
C30B 7/10

(21)Application number : 06-235850 (71)Applicant : SAKAI CHEM IND CO LTD
(22)Date of filing : 23.08.1994 (72)Inventor : FUKATSU YOSHIKI
YAMADA YOICHI
WADA MIZUHO

(54) ALPHA-FERRIC OXIDE AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To produce superfine nonacicular α -ferric oxide particles each made of a single crystal, having a narrow particle size distribution, minimizing flocculation energy because of the most stable surface state as particles and remarkably excellent in dispersibility.

CONSTITUTION: An aq. ferric salt soln. and an aq. alkali soln. are simultaneously neutralized at 5–70° C and the resultant ferric hydroxide is separated by filtration, washed with water and dispersed in water to prepare a slurry of pH6–10. This slurry is brought into a hydrothermal reaction at 130–200° C to obtain the objective nonacicular α -ferric oxide particles each made of a single crystal and having 0.01–0.1 μ m average particle diameter.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 17.04.1996
[Date of sending the examiner's decision of rejection]
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number] 2827917
[Date of registration] 18.09.1998
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-59398

(43) 公開日 平成8年(1996)3月5日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
C 30 B 29/16		9261-4G		
C 01 G 49/06	A			
C 09 C 1/22	P A L			
C 30 B 7/10				

審査請求 未請求 請求項の数2 書面 (全12頁)

(21) 出願番号	特願平6-235850	(71) 出願人	000174541 堺化学工業株式会社 大阪府堺市戎之町西1丁1番23号
(22) 出願日	平成6年(1994)8月23日	(72) 発明者	深津 良樹 福島県いわき市泉町下川字田宿110番地 堺化学工業株式会社小名浜事業所内
		(72) 発明者	山田 洋一 福島県いわき市泉町下川字田宿110番地 堺化学工業株式会社小名浜事業所内
		(72) 発明者	和田 瑞穂 福島県いわき市泉町下川字田宿110番地 堺化学工業株式会社小名浜事業所内
		(74) 代理人	弁理士 牧野 逸郎

(54) 【発明の名称】 α -酸化第二鉄及びその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 それぞれの粒子が単結晶からなり、表面状態が粒子として最も安定であって、従って、凝集エネルギーが最小限に抑制され、結果として、分散性に飛躍的にすぐれる超微細で、粒度分布が狭く、非針状性の α -酸化第二鉄粒子を提供することにある。更に、そのような α -酸化第二鉄の製造方法を提供することにある。

【構成】 本発明による α -酸化第二鉄は、平均粒子径が0.01~0.1 μm の範囲にあり、単結晶からなり、非針状性であることを特徴とする。かかる α -酸化第二鉄は、本発明に従って、第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液を5~70°Cの範囲の温度で同時中和し、生成した水酸化第二鉄を濾過し、水洗した後、水に分散させ、pH 6~10の範囲のスラリーとし、次いで、これを130~200°Cの温度にて水熱反応させることによって得ることができる。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】平均粒子径が0.01～0.1μmの範囲にあり、単結晶からなり、非針状性であることを特徴とするα-酸化第二鉄。

【請求項2】第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液を5～70°Cの範囲の温度で同時に中和し、生成した水酸化第二鉄を濾過し、水洗した後、水に分散させ、pH6～10の範囲のスラリーとし、次いで、これを130～200°Cの温度にて水熱反応させることを特徴とする平均粒子径が0.01～0.1μmの範囲にあり、単結晶からなり、非針状性であるα-酸化第二鉄の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、単結晶からなる超微細で非針状性のα-酸化第二鉄及びその製造方法に関する。このような本発明によるα-酸化第二鉄は、超微細のうえに、粒度分布が狭く、分散性にすぐれることから、透明性や紫外線吸収能にすぐれ、塗料、インク、化粧品、ゴム、プラスチック等の着色充填剤として有用である。更に、本発明によるα-酸化第二鉄は、単結晶からなることから、超微細研磨剤やフェライト用原料としても好適である。

【0002】

【従来の技術】非針状性のα-酸化第二鉄は、従来、赤色顔料や防錆顔料として、種々の分野において広く用いられており、通常、その平均粒子径は、隠蔽力の点から0.1μm以上である。一方、平均粒子径が0.1μm以下のものも、赤色透明性の点から、特殊な用途に用いられているが、近年、紫外線吸収剤等の機能性材料として、用途が拡大しつつある。

【0003】一般に、粒子の特性として、粒子が小さくなるに従って、表面エネルギーが増大し、従って、粒子は相互に凝集しやすくなり、そして、この凝集した複数の粒子をそれぞれ分散させるためには、多大のエネルギーを必要とする。また、分散させても、再凝集する性質が強い。特に、粒子径が0.01～0.1μmの範囲にある超微細粒子は、その傾向が著しく大きい。

【0004】従って、一般に、超微細粒子の実用的な用途の拡大を図るために、粉体の最も基本的な特性である分散性と分散安定性を如何に改良するかが、大きな技術的課題となっている。このような課題の解決手段の一つとして、平均粒子径に見合った表面積をもつ粒子、換言すれば、その平均粒子径で最も安定な表面状態を有する単結晶体を生成させるのが好ましい。

【0005】従来、α-酸化第二鉄の製造方法は、大別して、乾式法と湿式法とが知られている。乾式法としては、例えば、特公昭62-40293号公報に記載されているように、微細な含水酸化鉄を加熱脱水する方法が知られており、また、特開昭61-23225号公報に記載されているように、微細マグネタイトを加熱酸化

2

する方法も知られている。しかし、いずれの方法も、α-酸化第二鉄を得るには、結晶変態を経なければならぬので、単結晶のα-酸化第二鉄の粒子を生成させるのは困難である。また、いずれの方法も、250°C以上の加熱処理を含み、このような加熱処理によれば、粒子相互の焼結を生じるので、分散性の良好な粒子を得ることはできない。

【0006】他方、湿式法としては、第二鉄塩にアルカリを添加して、水酸化第二鉄を生成させ、これを濾過し、洗浄した後、乾燥させる方法が特開昭63-79726号公報に記載されており、また、含水酸化鉄の懸濁液を60°C～100°Cに加熱する方法が特開平5-208829号公報に記載されている。更に、金属鉄のアルカリ懸濁液中に酸化鉄の種晶を加えた後、酸化する方法が特開平5-262529号公報に記載されている。

【0007】しかし、これらの方法は、いずれも加熱処理の温度が100°C以下であるので、得られる反応生成物には含水酸化鉄が含まれざるを得ず、純粹なα-酸化第二鉄を得ることは困難である。また、脱水を完了させて、単結晶体を得ようすれば、反応に長時間を要する欠点がある。

【0008】このような欠点を改良するために、含水酸化鉄をオートクレーブ中で加熱処理する方法が特公平2-47410号公報や特公平5-59848号公報に記載されているように、既に知られており、また、これ以外にも、特開昭62-216919号公報に記載されているように、第二鉄塩水溶液を中和した後、オートクレーブ中で加熱処理する方法が知られている。しかし、このような方法によっても、尚、得られるα-酸化第二鉄には含水酸化鉄の混入が避けられず、そのうえ、粒度分布の狭い超微粒子を得るのは困難である。

【0009】以上のように、従来のα-酸化第二鉄の製造方法によれば、得られるα-酸化第二鉄が多結晶体であったり、或いは含水酸化鉄を含む不完全なα-酸化第二鉄であったりして、粒子の表面状態が活性であり、そのため凝集しやすく、分散性が十分でないものであった。

【0010】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、従来のα-酸化第二鉄及びその製造における上述した種々の問題を解決するためになされたものであつて、それぞれの粒子が単結晶からなり、表面状態が粒子として最も安定であつて、従って、凝集エネルギーが最小限に抑制され、結果として、分散性に飛躍的にすぐれる超微細で、粒度分布が狭く、非針状性のα-酸化第二鉄粒子を提供することを目的とする。

【0011】更に、本発明は、このようなα-酸化第二鉄の製造方法を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明によるα-酸化第

二鉄は、平均粒子径が $0.01\sim0.1\mu\text{m}$ の範囲にあり、単結晶からなり、非針状性であることを特徴とする。本発明において、非針状性とは、粒子の形状がほぼ六角形状（例えば、六角柱状）乃至実質的に球状であることをいう。

【0013】本発明による平均粒子径が $0.01\sim0.1\mu\text{m}$ の範囲にあり、単結晶からなり、非針状性である α -酸化第二鉄の製造方法は、第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液を $5\sim70^\circ\text{C}$ の範囲の温度で同時中和し、生成した水酸化第二鉄を濾過し、水洗した後、水に分散させ、 $\text{pH}6\sim10$ の範囲のスラリーとし、次いで、これを $130\sim200^\circ\text{C}$ の温度にて水熱反応させることを特徴とする。

【0014】先ず、本発明による平均粒子径が $0.01\sim0.1\mu\text{m}$ の範囲にあり、単結晶からなり、非針状性である α -酸化第二鉄の製造方法について説明する。本発明において、第二鉄塩としては、硫酸塩、硝酸塩、塩化物等を挙げることができ、これらは、通常、 $0.05\sim1.0\text{モル}/\text{l}$ の水溶液として用いられる。他方、アルカリ水溶液としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等の水酸化アルカリ金属の水溶液が好ましく、これらは、通常、 $0.15\sim3.0\text{モル}/\text{l}$ の水溶液として用いられる。

【0015】本発明の方法によれば、上記第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液を $5\sim70^\circ\text{C}$ の範囲の温度で同時中和して、微細な α -酸化第二鉄の種晶を含む水酸化第二鉄を生成させることができることが重要な要件である。ここに、同時中和とは、適量の水を入れた適宜の反応槽に攪拌下に第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液とを同時に所定の割合で加えて、 $\text{pH}7\sim8$ の範囲内に中和することをいう。このような同時中和においては、実際上は、第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液とは、できる限り、瞬時に反応させるのが好ましく、そのために、攪拌機として高速のディスパー、タービン、ホモジナイザー等を用いるのが好ましい。また、用いる第二鉄塩水溶液及びアルカリ水溶液の量は、中和反応によって生成する水酸化第二鉄の濃度が $0.025\sim0.5\text{モル}/\text{l}$ 、好ましくは、 $0.05\sim0.3\text{モル}/\text{l}$ の範囲になるように、それぞれ調節するのがよい。

【0016】本発明において、同時中和の際の温度は、 $5\sim70^\circ\text{C}$ の範囲であることが必要であり、好ましくは、 $10\sim50^\circ\text{C}$ の範囲の温度である。中和温度が 70°C を越えるときは、最終的に得られる α -酸化第二鉄の平均粒子径が $0.1\mu\text{m}$ を越えるので、好ましくない。

【0017】このような同時中和によって得られた水酸化第二鉄は、通常の手段及び方法によって濾過し、水洗すればよく、但し、水洗の程度は、得られる水酸化第二鉄を再度、水に分散させて、スラリーとするとときに、スラリー中の陰イオン濃度が 5000ppm 以下になるようになればよい。

【0018】このようにして、水酸化第二鉄を水に分散させ、スラリーとするとき、そのスラリー濃度は、水酸化第二鉄として、 $0.1\sim0.8\text{モル}/\text{l}$ 、好ましくは、 $0.3\sim0.6\text{モル}/\text{l}$ の範囲である。水酸化第二鉄のスラリーにおいて、水酸化第二鉄の濃度が $0.1\text{モル}/\text{l}$ よりも小さいときは、徒に多量のスラリーを必要として、反応経済上、不利である。しかし、濃度が $0.8\text{モル}/\text{l}$ を越えるときは、水酸化第二鉄の濃度が高く、次工程の水熱反応が不均一となって、得られる α -酸化第二鉄は粒度分布が広いものである。

【0019】本発明によれば、このようにして、所定の濃度の水酸化第二鉄のスラリーを調製した後、これにアルカリ水溶液を添加して、その pH を $6\sim10$ の範囲に調整する。水酸化第二鉄のスラリーの pH が 6 よりも小さいときは、水熱反応によって得られる α -酸化第二鉄に含水酸化鉄が含まれ、他方、 pH が高くなるに従って、粒子径が大きくなり、 pH が 10 を越えるときは、粒子径 $0.1\mu\text{m}$ 以上の大きい粒子が生成する。

【0020】本発明において、水熱反応は、 $130\sim200^\circ\text{C}$ の範囲の温度で行なうのが好ましい。一般に、水熱反応とは、固体粒子のスラリーを加圧下に 100°C を越える温度に加熱することをいう。本発明の方法においては、水酸化第二鉄のスラリーを加圧下に $130\sim200^\circ\text{C}$ の範囲の温度に加熱することをいい、ここに、反応温度が 130°C よりも低いときは、含水酸化鉄が生成したり、また、反応に長時間を要する。しかし、反応温度が 200°C を越えることは、オートクレーブの構造上、不利であるほか、熱エネルギー的にも不利である。

【0021】このようにして、本発明の方法によれば、水酸化第二鉄のスラリーを水熱反応させることによって、目的とする α -酸化第二鉄を得ることができる。即ち、本発明によって得られる α -酸化第二鉄は、平均粒子径が $0.01\sim0.1\mu\text{m}$ の範囲にあり、その形状がほぼ六角形状（例えば、六角柱状）乃至実質的に球状であって、しかも、平均粒子径と結晶子径がほぼ一致すると共に、比表面積の実測値と計算値もほぼ一致し、更に、含水酸化鉄の脱水温度範囲の $200\sim350^\circ\text{C}$ に加熱した場合の重量減少も殆ど認められないので、単結晶からなるものである。

【0022】従って、かかる本発明による α -酸化第二鉄は、各粒子が単結晶からなり、表面状態が最も安定であって、凝集エネルギーも最小限に抑制されるので、分散性に極めてすぐれている。このような α -酸化第二鉄は、透明性や紫外線吸収能にすぐれ、塗料、インク、化粧品、ゴム、プラスチック等の着色充填剤として有用である。

【0023】以上のように、本発明は、水酸化第二鉄の水熱反応によって、平均粒子径 $0.01\sim0.1\mu\text{m}$ の非針状性の α -酸化第二鉄の単結晶を得る条件として、第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液の中和によって生成す

る水酸化第二鉄の性状が非常に重要であることを見出し、中和条件を種々検討して、完成されたものである。

【0024】従来のように、第二鉄塩水溶液にアルカリ水溶液を加えて、水酸化第二鉄を生成させる方法では、中和が進行するにつれて、混合物のpHが刻々と変化し、その時々で生成する水酸化第二鉄の性状が異なると考えられる。また、このような方法による中和によって生成した水酸化第二鉄中には、 α -酸化第二鉄の種晶が殆ど存在しないことから、水熱反応において、種晶の生成とその成長反応が同時進行していると考えられる。

【0025】従って、従来の方法によって得られた水酸化第二鉄を水熱反応に付して、 α -酸化第二鉄を得る場合には、性状の異なる水酸化第二鉄から生成する α -酸化第二鉄の種晶は粒度分布が広くなり、この種晶を核として成長した α -酸化第二鉄も粒度分布が広くなるのは当然である。また、従来の方法によって得られた水酸化第二鉄は縮合度が低いので、生成した α -酸化第二鉄中に含水酸化鉄が含まれる可能性が大きい。

【0026】これに対して、本発明によれば、第二鉄塩水溶液とアルカリ水溶液とを常時、一定のpH条件下で同時中和することによって、水酸化第二鉄を生成させるので、得られる水酸化第二鉄の性状も実質的に一定であって、この中に0.01μm以下の粒度分布の狭い α -酸化第二鉄種晶が相当数見出され、縮合度の高い水酸化第二鉄が生成していると考えられる。そこで、このような水酸化第二鉄を水熱反応させることによって、既に水酸化第二鉄中に存在する α -酸化第二鉄の種晶の成長が主反応となって、粒度分布の狭い単結晶粒子が生成するのであろう。

【0027】

【実施例】以下に実施例及び比較例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。以下において、平均粒子径は、電子顕微鏡から測定した数値の平均値であり、比表面積はBET法にて測定した値である。比較のために、生成物の真比重を測定すると共に、粒子形状を真球状と仮定して、これより比表面積の理論値を算出した。生成物の同定は、X線回折法にて行ない、結晶子径をホールの式により算出した。

【0028】また、生成物中に含水酸化鉄が含まれているかどうかの判定として、含水酸化鉄の脱水温度が270°C付近であることから、熱重量分析により、200~350°Cでの重量減少を測定した。分散性は、以下の塗料組成物をサンドミルで3時間分散処理した後、ポリエチレンテレフタレートフィルム上に乾燥膜厚が約3μmになるように塗布し、乾燥させた後、60度グロスを測定した。

【0029】

生成物	80.9重量部
塩化ビニル樹脂	7.1重量部

ウレタン樹脂	10.5重量部
レシチン	0.4重量部
メチルエチルケトン	56.2重量部
トルエン	56.2重量部
シクロヘキサン	48.2重量部

【0030】実施例1

ディスパー攪拌機を取り付けた有効容量15リットルの反応槽に溢出口まで水を注入し、その温度を20°Cに調整した。攪拌機を2000rpmで回転しながら、攪拌翼の直下に0.2モル/1塩化第二鉄水溶液と0.6モル/1水酸化ナトリウム水溶液をそれぞれ各々2リットル/分で添加した。中和pHを7.5±0.2、中和温度を40°Cに保持しながら、このようにして同時中和を続け、生成した水酸化第二鉄濃度が0.1モル/lに達してから、30分後より、溢出液を貯留し、濾過、水洗した。

【0031】このようにして得られた濾過ケーキを解碎し、水酸化第二鉄として、0.5モル/1となるようにスラリーとした。このときの塩素濃度は3000ppm、pHは7.0であった。この水酸化第二鉄のスラリーを水酸化ナトリウム水溶液でpHを8に調整し、20リットル容量のオートクレーブに入れ、170°Cで2時間、水熱反応を行なった。反応の終了後、得られた反応生成物を冷却し、常法により、濾過、水洗、乾燥した。

【0032】このようにして得られた反応生成物は、 α -酸化第二鉄であり、図1に示す電子顕微鏡写真(10万倍)から明らかなるおり、平均粒子径0.03μmの六方形粒子であり、粒度分布の狭いものであった。また、表1に示すように、平均粒子径と結晶子径のみならず、比表面積の実測値と計算値とがほぼ一致し、加熱による重量減少も殆どなく、図5に示すように、500°Cに加熱後の粒子の電子顕微鏡写真(10万倍)においても、脱水孔が全く認められず、得られた α -酸化第二鉄粒子が単結晶からなることが明らかである。分散グロスも高く、分散性が著しく向上していることも明らかである。

【0033】実施例2
同時中和の中和温度を40°Cとすると共に、得られた水酸化第二鉄を解碎した後のpHを9とした以外は、実施例1と同様に操作した。得られた生成物は、表1にその性質を示すと共に、図2にその電子顕微鏡写真(10万倍)を示すように、平均粒子径0.06μmの六方形の α -酸化第二鉄であり、また、図6に示すように、500°Cに加熱後の粒子の電子顕微鏡写真(10万倍)においても、脱水孔が全く認められず、得られた α -酸化第二鉄粒子が単結晶からなることが明らかである。分散グロスも高い。

【0034】比較例1

実施例1と同じ反応槽に0.2モル/1塩化第二鉄水溶液を7.5リットル注入し、2000rpmの攪拌下

40 得られた生成物は、表1にその性質を示すと共に、図2にその電子顕微鏡写真(10万倍)を示すように、平均粒子径0.06μmの六方形の α -酸化第二鉄であり、また、図6に示すように、500°Cに加熱後の粒子の電子顕微鏡写真(10万倍)においても、脱水孔が全く認められず、得られた α -酸化第二鉄粒子が単結晶からなることが明らかである。分散グロスも高い。

50 【0034】比較例1

実施例1と同じ反応槽に0.2モル/1塩化第二鉄水溶液を7.5リットル注入し、2000rpmの攪拌下

に、これに0.6モル／1水酸化ナトリウム水溶液を加えて、pHを7.5とした。中和温度は20°Cであった。このような操作を5回繰り返した後、これら5回分をひとまとめにして、濾過、水洗した。以後の操作は実施例1と同様に行なった。このようにして得られた反応生成物は、図3に示したように平均粒子径0.04μmの球状の α -酸化第二鉄であったが、表1に示したように、重量減少が大きく、図7に示すように、500°Cに加熱した後は、無数の脱水孔が認められることから、含水酸化鉄が相当量含まれていることが理解される。

*10

*【0035】比較例2

実施例1で得られた水酸化第二鉄のスラリーを95°Cで5時間加熱反応させた後、反応生成物を濾過、水洗、乾燥した。得られた反応生成物には、図4に示すように、球状の粒子と針状の粒子とが混在しており、X線回折によっても、ゲーサイト(α -FeOOH)のピークが認められた。

【0036】

【表1】

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
平均粒子径(μm)	0.03	0.06	0.04	0.08
比表面積(m²/g)				
実測値	39.0	20.6	39.1	33.9
計算値	40.0	20.0	30.0	—
X線回折	α -Fe ₂ O ₃ と α -FeOOH			
粒子形状	六角柱状	六角柱状	球状	六角柱状と 針状
結晶子径(Å)	314	539	365	—
重量減少(%)	0.2	0.1	0.6	—
分散グロス	165	150	130	—

【0037】

【発明の効果】以上のように、本発明による α -酸化第二鉄の粒子は、超微細な単結晶からなり、粒度分布も狭いことから、分散性に極めてすぐれている。従って、塗料、インク、化粧品、ゴム、プラスチック等の充填剤として有用であるのみならず、単結晶である性質を利用して、研磨剤やフェライト用原料としても好適である。

【図面の簡単な説明】

【図1】は、本発明の方法(実施例1)によって得られた α -酸化第二鉄の粒子構造を示す透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

【図2】本発明の方法(実施例2)によって得られた α -酸化第二鉄の粒子構造を示す透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

【図3】は、比較例1によって得られた α -酸化第二鉄の粒子構造を示す透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

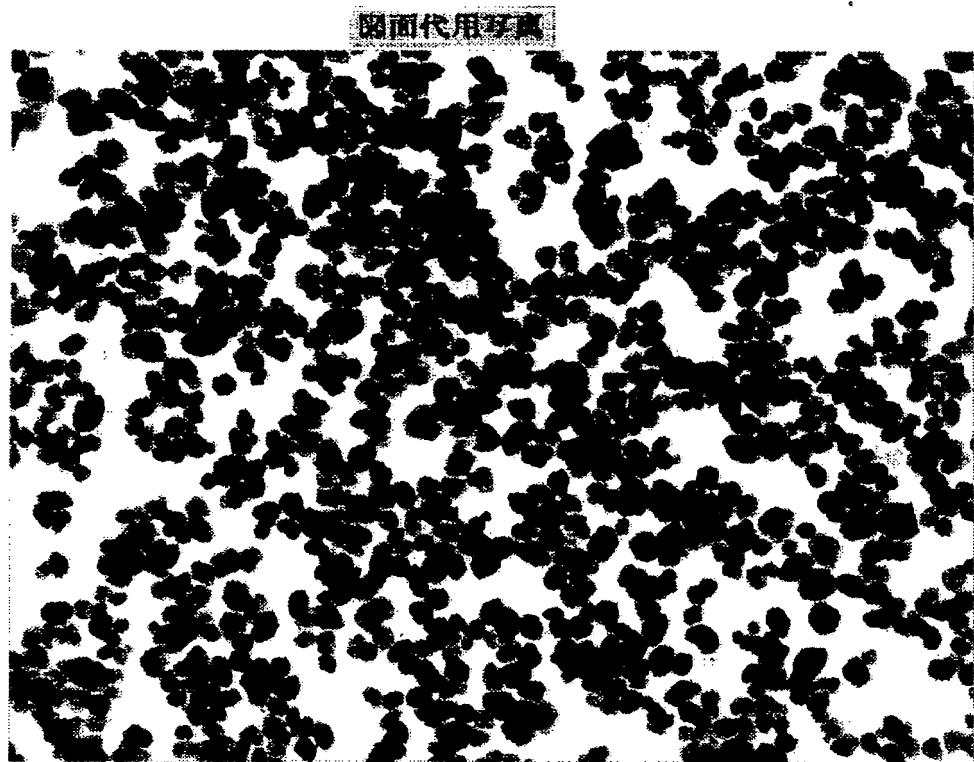
【図4】は、比較例2によって得られた生成物の粒子構造を示す透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

【図5】は、本発明の方法(実施例1)によって得られた α -酸化第二鉄の粉末を500°Cに加熱した後、冷却したときの透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

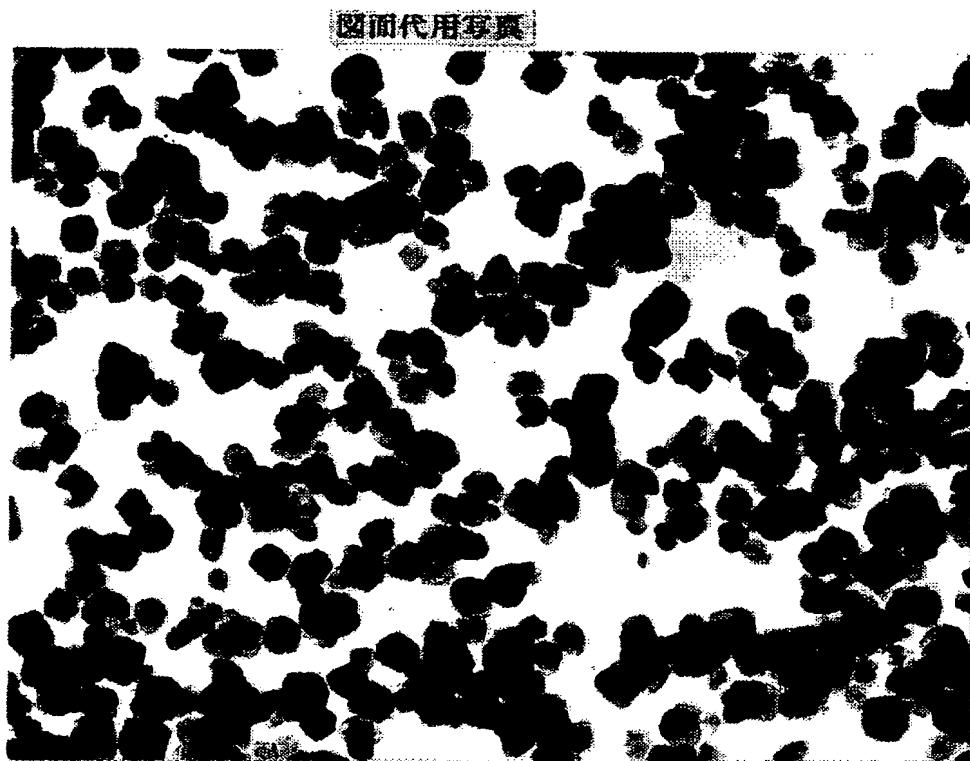
【図6】は、本発明の方法(実施例2)によって得られた α -酸化第二鉄の粉末を500°Cに加熱した後、冷却したときの透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

【図7】は、比較例1によって得られた α -酸化第二鉄の粉末を500°Cに加熱した後、冷却したときの透過型電子顕微鏡写真(10万倍)である。

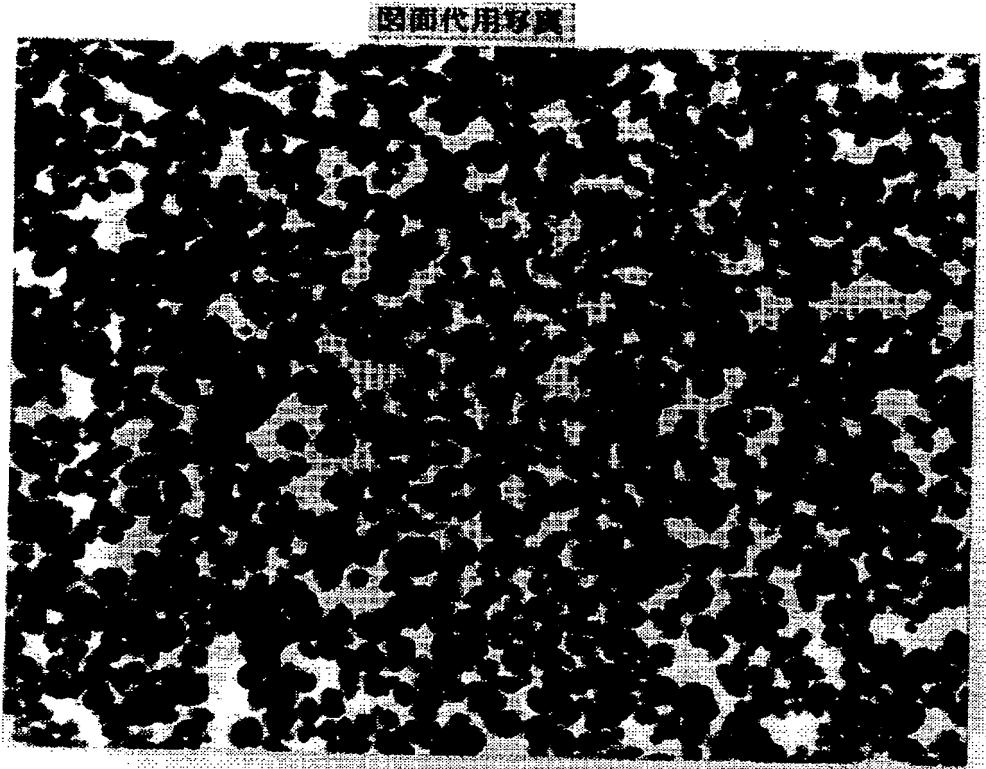
【図1】



【図2】

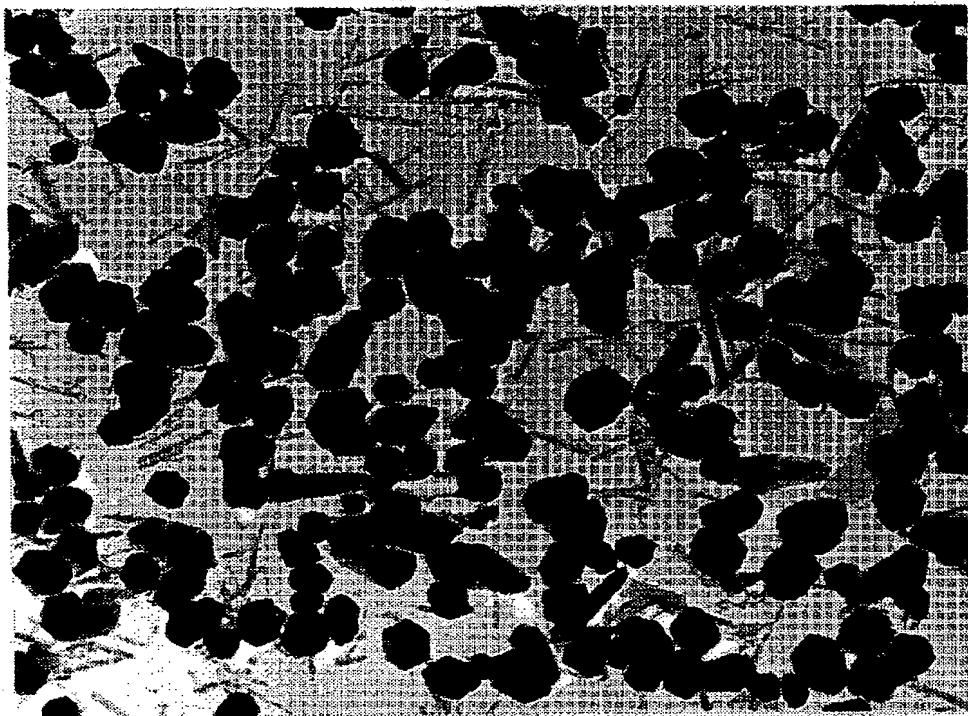


【図3】

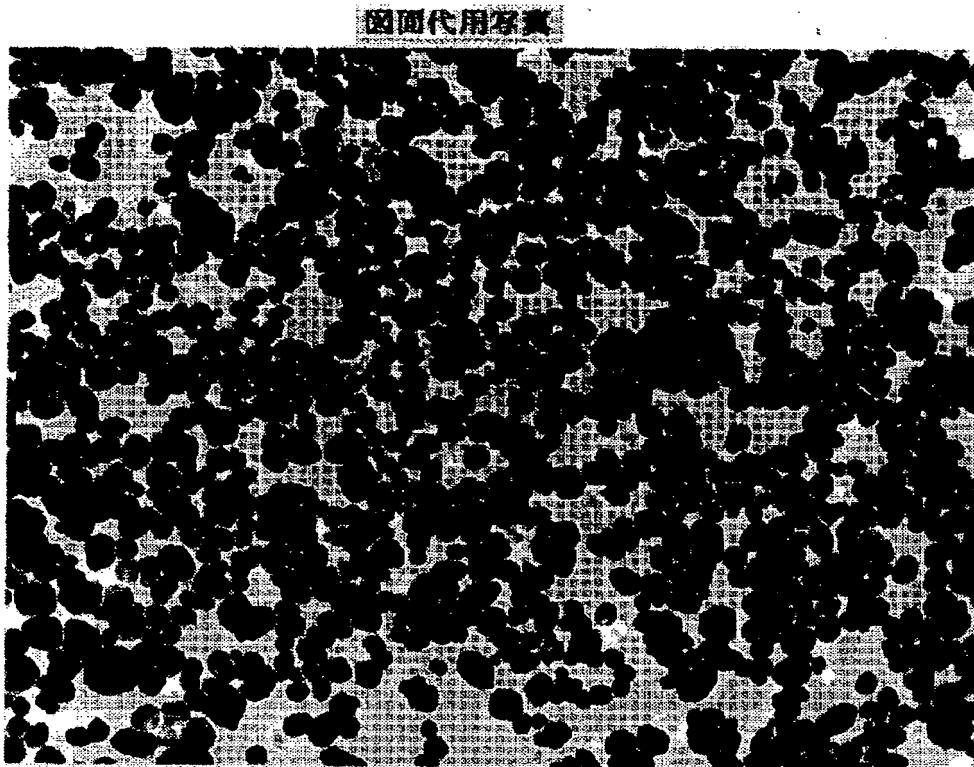


【図4】

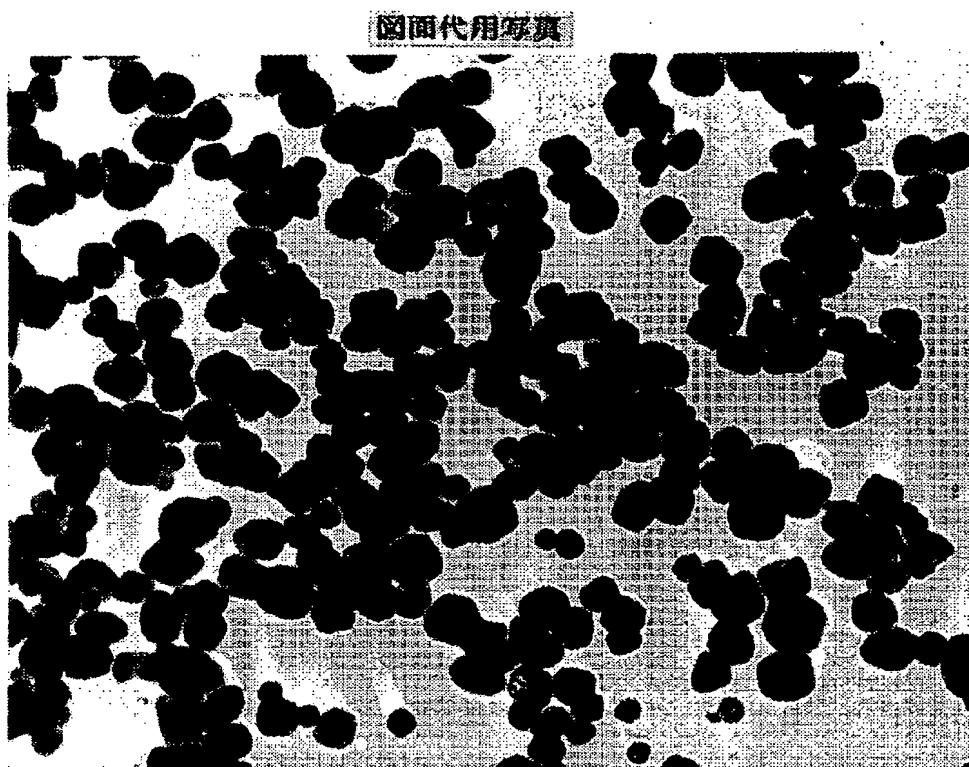
図面代用写真



【図5】

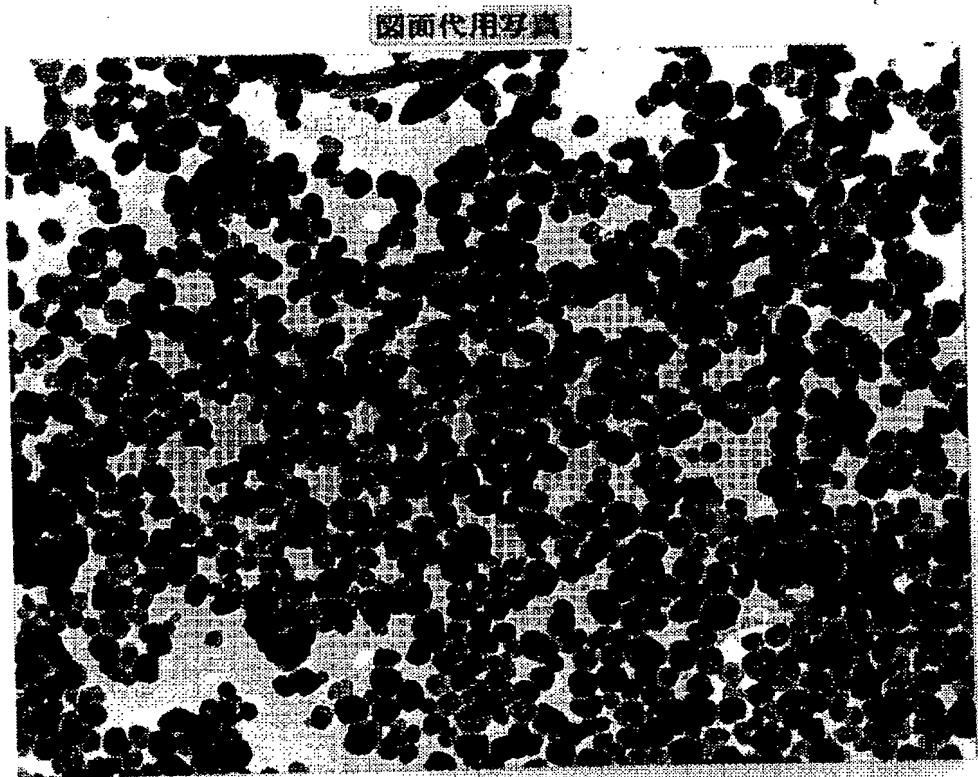


【図6】



THIS PAGE BLANK (USPTO)

【図7】



THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)